

# PATENT COOPERATION TREATY

From the INTERNATIONAL BUREAU

**PCT**

## NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

To:

Commissioner  
US Department of Commerce  
United States Patent and Trademark  
Office, PCT  
2011 South Clark Place Room  
CP2/5C24  
Arlington, VA 22202  
ETATS-UNIS D'AMERIQUE  
in its capacity as elected Office

Date of mailing:

22 March 2001 (22.03.01)

International application No.:

PCT/JP00/06153

Applicant's or agent's file reference:

FI-1700

International filing date:

08 September 2000 (08.09.00)

Priority date:

10 September 1999 (10.09.99)

Applicant:

KUBOTA, Mineyuki et al

1. The designated Office is hereby notified of its election made:



in the demand filed with the International preliminary Examining Authority on:

02 February 2001 (02.02.01)



in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was



was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des C. lombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Authorized officer:

J. Zahra

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

## 国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)  
[PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 F1-1700	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220) 及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JPO0/06153	国際出願日 (日.月.年) 08.09.00	優先日 (日.月.年) 10.09.99
出願人(氏名又は名称) 出光興産株式会社		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。  
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 3 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

## 1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第 \_\_\_\_\_ 図とする。 ☐ 出願人が示したとおりである。

☒ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08F6/00、C08G64/40、C08G65/30、C10M107/24、  
C10M107/34// C10N20:00、C10N40:00

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08F6/00、C08G64/40、C08G65/30、C10M107/24、  
C10M107/34

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP, 51-138279, A (第一工業製薬株式会社)、29. 11月. 1976 (29. 11. 76)、特許請求の範囲 ファミリーなし	1-12
Y	JP, 10-46169, A (出光興産株式会社)、17. 2月. 1998 (17. 02. 98)、特許請求の範囲 ファミリーなし	1-12
Y	JP, 10-159734, A (三洋電機株式会社)、16. 6 月. 1998 (16. 06. 98)、特許請求の範囲	1-12

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

05. 12. 00

国際調査報告の発送日

19. 12. 00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

佐藤 邦彦

4 J

8215

電話番号 03-3581-1101 内線 6827

C (続き): 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
	& EP, 846749, A1	
Y	JP, 10-147682, A (出光興産株式会社)、2. 6月. 1998 (02. 06. 98)、特許請求の範囲 ファミリーなし	1-12
Y	JP, 4-197407, A (旭硝子株式会社)、17. 7月. 1 992 (17. 07. 92)、特許請求の範囲 ファミリーなし	1-12
Y	US, 5384056, A (Mitsui Petrochemical Industrie s)、Jan. 24, 1995 (24. 01. 95)、特許請求の範囲 & EP, 551865, A & JP, 5-255680, A	1-12

PCT

国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)  
[PCT36条及びPCT規則70]


REC'D 05 OCT 2001

WIPO

PCT

出願人又は代理人 の書類記号 F1-1700	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知(様式PCT/ IPEA/416)を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP00/06153	国際出願日 (日.月.年) 08.09.00	優先日 (日.月.年) 10.09.99
国際特許分類(IPC) Int. Cl <sup>7</sup> C08F6/00、C08G64/40、C08G65/30、 C10M107/24、C10M107/34// C10N20:00、C10N40:00		
出願人(氏名又は名称) 出光興産株式会社		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条(PCT36条)の規定に従い送付する。
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 4 ページからなる。  <input type="checkbox"/> この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。 (PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照) この附属書類は、全部で ページである。
3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。  I <input checked="" type="checkbox"/> 国際予備審査報告の基礎 II <input type="checkbox"/> 優先権 III <input type="checkbox"/> 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成 IV <input type="checkbox"/> 発明の単一性の欠如 V <input checked="" type="checkbox"/> PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明 VI <input type="checkbox"/> ある種の引用文献 VII <input type="checkbox"/> 国際出願の不備 VIII <input type="checkbox"/> 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 02.02.01	国際予備審査報告を作成した日 21.09.01	
名称及びあて先 日本国特許庁(IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官(権限のある職員) 佐藤 邦彦	4 J 8215 
電話番号 03-3581-1101 内線 6827		

## I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に  
応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。  
PCT規則70.16, 70.17)

☒ 出願時の国際出願書類

- ☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 出願時に提出されたもの  
請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 PCT19条の規定に基づき補正されたもの  
請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 出願時に提出されたもの  
図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である \_\_\_\_\_ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語  
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語  
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表  
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった  
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

- ☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ  
☐ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項  
☐ 図面 図面の第 \_\_\_\_\_ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならず、本報告に添付する。)

## V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

## 1. 見解

新規性(N)	請求の範囲	1-12	有
	請求の範囲		無
進歩性(IS)	請求の範囲		有
	請求の範囲	1-12	無
産業上の利用可能性(IA)	請求の範囲	1-12	有
	請求の範囲		無

## 2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

刊行物1: JP 51-138279 A (第一工業製薬株式会社)、29. 11月、1976 (29. 11. 76)、特許請求の範囲  
ファミリーなし

刊行物2: JP 10-46169 A (出光興産株式会社)、17. 2月、1998 (17. 02. 98)、特許請求の範囲  
ファミリーなし

刊行物3: JP 10-159734 A (三洋電機株式会社)、16. 6月、1998 (16. 06. 98)、特許請求の範囲  
& EP, 846749, A1

刊行物4: JP 10-147682 A (出光興産株式会社)、2. 6月、1998 (02. 06. 98)、特許請求の範囲  
ファミリーなし

刊行物5: JP 4-197407 A (旭硝子株式会社)、17. 7月、1992 (17. 07. 92)、特許請求の範囲  
ファミリーなし

刊行物6: US 5384056 A (Mitsui Petrochemical Industries)、Jan. 24, 1995 (24. 01. 95)、特許請求の範囲 & EP, 551865, A  
& JP, 5-255680, A

(請求項1-4について)

請求項1-4に係る発明は、国際調査報告に引用された刊行物1-6により進歩性を有しない。

刊行物1, 5には、潤滑剤やブレーキ液に用いられる含酸素化合物を吸着剤で処理することが記載されており、刊行物2-4には、ポリビニルエーテル系化合物を潤滑剤として用いることが記載されており、刊行物6には、ポリカーボネート系化合物を潤滑剤として用いることが記載されている。刊行物1, 5に記載されている潤滑剤を吸着剤で処理する技術を、刊行物2-4, 6に記載されている潤滑剤に適用することは、当業者であれば容易に想到することができたものである。

補充欄（いずれかの欄の大きさが足りない場合に使用すること）

第 V 欄の続き

請求項 2-4 に係る発明は、請求項 1 に係る発明をポリビニルエーテル系化合物、吸着剤について限定しているが、刊行物 2-4、6 と刊行物 1、5 にそれぞれ記載されている。

（請求項 5-9 について）

請求項 5-9 に係る発明は、国際調査報告に引用された刊行物 1-6 により進歩性を有しない。

請求項 5-9 に係る発明は、潤滑油としての用途で請求項 1 に係る発明を限定しているが、潤滑油として用いられることは、刊行物 2-4、6 に記載されている。

（請求項 10-12 について）

請求項 10-12 に係る発明は、国際調査報告に引用された刊行物 1-6 により進歩性を有しない。

請求項 10-12 に係る発明は、吸着剤と接触させる工程で、請求項 1 に係る発明を限定しているが、この点は、刊行物 1、5 に記載されている。



# PATENT COOPERATION TREATY

WO 01/19875  
PCT/JP00/06153

**PCT**

## NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:  
OHTANI, Tamotsu  
Tomoe-cho, Annex-II 4F  
8-27, Toranomom 3-chome  
Minato-ku  
Tokyo 105-0001  
JAPON

<b>Date of mailing</b> (day/month/year) 22 March 2001 (22.03.01)		
<b>Applicant's or agent's file reference</b> FI-1700		<b>IMPORTANT NOTICE</b>
<b>International application No.</b> PCT/JP00/06153	<b>International filing date</b> (day/month/year) 08 September 2000 (08.09.00)	<b>Priority date</b> (day/month/year) 10 September 1999 (10.09.99)
<b>Applicant</b> IDEMITSU KOSAN CO., LTD. et al		

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:  
**US**

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:  
**EP,JP**

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on  
 22 March 2001 (22.03.01) under No. WO 01/19875

### REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months\* (or later in some Offices) from the priority date, a **demand for international preliminary examination** must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

### REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the **national phase**, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

<b>The International Bureau of WIPO</b> 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland  Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer  <p style="text-align: center;">J. Zahra</p> Telephone No. (41-22) 338.83.38
---	--

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/06153

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C08F6/00, C08G64/40, C08G65/30, C10M107/24,  
C10M107/34// C10N20:00, C10N40:00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C08F6/00, C08G64/40, C08G65/30, C10M107/24,  
C10M107/34

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP, 51-138279, A (DAI-ICHI KOGYO SEIYAKU CO., LTD.), 29 November, 1976 (29.11.76), Claims (Family: none)	1-12
Y	JP, 10-46169, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 17 February, 1998 (17.02.98), Claims (Family: none)	1-12
Y	JP, 10-159734, A (Sanyo Electric Co., Ltd.), 16 June, 1998 (16.06.98), Claims & EP, 846749, A1	1-12
Y	JP, 10-147682, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 02 June, 1998 (02.06.98), Claims (Family: none)	1-12
Y	JP, 4-197407, A (Asahi Glass Co., Ltd.), 17 July, 1992 (17.07.92), Claims (Family: none)	1-12

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search  
05 December, 2000 (05.12.00)

Date of mailing of the international search report  
19 December, 2000 (19.12.00)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/06153

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	US, 5384056, A (Mitsui Petrochemical Industries), 24 January, 1995 (24.01.95), Claims & EP, 551865, A & JP, 5-255680, A	1-12

37  
Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference FI-1700	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP00/06153	International filing date (day/month/year) 08 September 2000 (08.09.00)	Priority date (day/month/year) 10 September 1999 (10.09.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C08F 6/00, C08G 64/40, 65/30, C10M 107/24, 107/34 // C10N 20:00, 40:00		
Applicant IDEMITSU KOSAN CO., LTD.		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
2. This REPORT consists of a total of <u>4</u> sheets, including this cover sheet.  <input type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).  These annexes consist of a total of _____ sheets.
3. This report contains indications relating to the following items:  I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report II <input type="checkbox"/> Priority III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application VIII <input type="checkbox"/> Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 02 February 2001 (02.02.01)	Date of completion of this report 21 September 2001 (21.09.2001)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

## I. Basis of the report

## 1. With regard to the elements of the international application:\*

☒ the international application as originally filed☐ the description:

pages \_\_\_\_\_, as originally filed

pages \_\_\_\_\_, filed with the demand

pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

☐ the claims:

pages \_\_\_\_\_, as originally filed

pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19

pages \_\_\_\_\_, filed with the demand

pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

☐ the drawings:

pages \_\_\_\_\_, as originally filed

pages \_\_\_\_\_, filed with the demand

pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

☐ the sequence listing part of the description:

pages \_\_\_\_\_, as originally filed

pages \_\_\_\_\_, filed with the demand

pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

2. With regard to the **language**, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).3. With regard to any **nucleotide and/or amino acid sequence** disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:☐ contained in the international application in written form.☐ filed together with the international application in computer readable form.☐ furnished subsequently to this Authority in written form.☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:☐ the description, pages \_\_\_\_\_☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

P/JP 00/06153

**V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement****1. Statement**

Novelty (N)	Claims	1-12	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims		YES
	Claims	1-12	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-12	YES
	Claims		NO

**2. Citations and explanations**

Document 1: JP, 51-138279, A (Dai-ichi Kogyo Seiyaku Co., Ltd.), 29 November 1976 (29.11.76); claims (Family: none)

Document 2: JP, 10-46169, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 17 February 1998 (17.02.98); claims (Family: none)

Document 3: JP, 10-159734, A (Sanyo Electric Co., Ltd.), 16 June 1998 (16.06.98); claims (Family: none)

Document 4: JP, 10-147682, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd., 2 June 1998 (02.06.98); claims (Family: none)

Document 5: JP, 4-197407, A (Asahi Glass Co., Ltd.), 17 July 1992 (17.07.92); claims (Family: none)

Document 6: US, 5384056, A (Mitsui Petrochemical Industries), 24 January 1995 (24.01.95); claims & EP, 551865 & JP, 5-255680, A

**Claims 1-4**

The inventions set forth in Claims 1-4 do not involve an inventive step in the light of Documents 1-6 cited in the international search report.

Documents 1 and 5 disclose adsorbent treatment of an oxygen-containing compound for use as a lubricant or in brake fluid, Documents 2-4 disclose use of poly(vinyl

ether) compounds as lubricants and Document 6 discloses use of polycarbonate compounds as lubricants. A person skilled in the art could easily conceive of applying a technique of adsorbent treatment of a lubricant disclosed in Document 1 or 5 to a lubricant disclosed in Document 2-4 or Document 6.

The inventions set forth in Claims 2-4 define poly(vinyl ether) compounds and adsorbents, but these are disclosed in Documents 2-4 and 6 and Documents 1 and 5, respectively.

#### Claims 5-9

The inventions set forth in Claims 5-9 do not involve an inventive step in the light of Documents 1-6 cited in the international search report.

The inventions set forth in Claims 5-9 limit the application of the invention set forth in Claim 1 to lubricating oil; however, use as lubricating oil is disclosed in Documents 2-4 and 6.

#### Claims 10-12

The inventions set forth in Claims 10-12 do not involve an inventive step in the light of Documents 1-6 cited in the international search report.

The inventions set forth in Claims 10-12 limit the invention set forth in Claim 1 by defining a process of contact with an adsorbent; however, this feature is disclosed in Documents 1 and 5.



P.B. 5818 - Patentlaan 2  
2280 HV Rijswijk (ZH)  
☎ (070) 340 2040  
Tx 31651 epo nl  
FAX (070) 340 3016

Europäisches  
Patentamt  
Zweigstelle in  
Den Haag  
Recherchen-  
abteilung

Eu an  
Patent Office  
Branch at  
The Hague  
Search  
Division

Office européen  
des brevets  
Département à  
La Haye  
Division de la  
recherche

Gille Hrabal Struck Neidlein Prop Roos  
Patentanwälte,  
Brucknerstrasse 20  
40593 Düsseldorf  
ALLEMAGNE

Gille Hrabal Struck Neidlein Prop Roos	
Eingang am:	11. Nov. 2002
Frist:	8.12.02
Vorfrist:	

Datum/Date
08.11.02

Zeichen/Ref./Réf. T61 802-ok	Anmeldung Nr./Application No./Demande n°//Patent Nr./Patent No./Brevet n° 00957055.7-2102/JP0006153
Anmelder/Applicant/Demandeur//Patentinhaber/Proprietor/Titulaire IDEMITSU KOSAN COMPANY LIMITED, et al	

## COMMUNICATION

The European Patent Office herewith transmits the partial European search report under Rule 46(1) EPC relating to the above-mentioned European patent application.

Copies of the documents cited in the search report are enclosed.

The applicant's attention is drawn to the following:

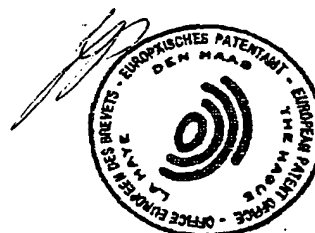
The search Division informs the applicant that if the European search report is also to cover inventions other than the invention first mentioned in the claims, a further search fee must be paid for each of these inventions, within ONE MONTH after notification of this communication.

If the application has been filed up to 30 June 1999, the search fee in force before 01 July 1999 (EUR 869,-) or the equivalent applicable on the date of payment is payable.

**This applies also to the search fees requested under Rule 46(1) EPC.**

See also OJ EPO 06/1999, 405.

- ☐ The abstract was modified by the Search Division and the definitive text is attached to the present communication.
- ☒ Additional set(s) of copies of the documents cited in the European search report is (are) enclosed as well.



### Note to users of the automatic debiting procedure:

Unless the EPO receives prior instructions to the contrary, the search fee(s) will be debited on the last day of the period for payment. For further details see the Arrangements for the automatic debiting procedure, Supplement to OJ EPO 02/1999.

REGISTERED LETTER





The Search Division considers that the present European patent application does not comply with the requirements of unity of invention and relates to several inventions or groups of inventions, namely:

1. Claims: 1-5 and 7-12

Lubricating oil comprising a polyvinyl ether.

2. Claims: 1, 3, 4, 6 and 8-10

Lubricating oil comprising a polyalkylene glycol.

3. Claims: 1, 3, 4, 6 and 8-10

Lubricating oil comprising a polyol ester.

4. Claims: 1, 3, 4, 6 and 8-10

Lubrication oil comprising a cyclic polyether.

5. Claims: 1, 3, 4, 6 and 8-10

Lubrication oil comprising a carbonate compound.

Main claims 5 and 6 of the present application disclose a lubricating oil comprising a high purity compound having oxygen selected from

- a polyvinyl ether,
- a polyalkylene glycol,
- a polyol ester,
- a cyclic polyether, and
- a carbonate compound,

said high purity compound having oxygen being obtainable by a process which comprises treating the corresponding crude oxygen-containing compound with an adsorbent.

The special technical feature, in the sense of Rule 30 EPC, linking together the products of main claims 5 and 6 is that they are treated with an adsorbent. This treatment is stated to provide "high purity" and a high volume resistivity, typically of 10<sup>12</sup> ohm.cm or greater (pages 4 and 5 of the present application).

However, lubricating oils comprising a polyvinyl ether and being treated with an ion-exchange resin are known from document D1 (examples 1-3). The purified lubricating oils of D1 have the same high volume resistivity as defined in the present application (see D1, tables).

As the technical effect, i.e. high volume resistivity, achieved by the special technical feature of main claims 5 and 6 of the present application is known from D1, there is no single general inventive concept linking together the oxygen-containing compounds of claims 5 and 6, which is contrary to Art. 82 EPC.

In other words, the present application discloses five inventions:



The Search Division considers that the present European patent application does not comply with the requirements of unity of invention and relates to several inventions or groups of inventions, namely:

Invention 1: claims 1-5 and 7-12 with respect to the polyvinyl ether,

Invention 2: claims 1, 3, 4, 6 and 8-10 with respect to the polyalkylene glycol,

Invention 3: claims 1, 3, 4, 6 and 8-10 with respect to the polyol ester,

Invention 4: claims 1, 3, 4, 6 and 8-10 with respect to the cyclic polyether, and

Invention 5: claims 1, 3, 4, 6 and 8-10 with respect to the carbonate compound.

The present search has being carried out on invention 1, i.e. claims 1-5 and 7-12 with respect to the polyvinyl ether.



European Patent  
Office

**SUPPLEMENTARY  
PARTIAL EUROPEAN SEARCH REPORT**  
under Rule 46, paragraph 1 of the European Patent  
Convention

Application Number

EP 00 95 7055

DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT			
Category	Citation of document with indication, where appropriate, of relevant passages	Relevant to claim	CLASSIFICATION OF THE APPLICATION (Int.CI.7)
X	EP 0 644 175 A (IDEMITSU KOSAN CO) 22 March 1995 (1995-03-22) * page 33, line 12 - line 26; claim 20; examples 1-3; tables *	1-5,7-12	C08F6/00 C08G64/40 C08G65/30 C10M107/24
Y	* page 15, line 42 - line 43 * ---	1-5,7-12	C10M107/34 C08F16/12
Y	EP 0 528 043 A (ASAHI CHEMICAL IND) 24 February 1993 (1993-02-24) * page 21, line 56 - page 22, line 15 * * page 55, line 1 - line 20; table 14 * ---	1-5,7-12	C10M171/00 C10M105/38
A	US 5 393 856 A (KULZICK MATTHEW A ET AL) 28 February 1995 (1995-02-28) -----		
			TECHNICAL FIELDS SEARCHED (Int.CI.7)
			C08F C10M C08G
<b>LACK OF UNITY OF INVENTION</b>			
The Search Division considers that the present European patent application does not comply with the requirements of unity of invention and relates to several inventions or groups of inventions, namely:			
see sheet B			
The present partial European search report has been drawn up for those parts of the European patent application which relate to the invention first mentioned in the claims.			
Place of search		Date of completion of the search	Examiner
MUNICH		30 October 2002	Lohner, P
CATEGORY OF CITED DOCUMENTS			
X : particularly relevant if taken alone Y : particularly relevant if combined with another document of the same category A : technological background O : non-written disclosure P : intermediate document		T : theory or principle underlying the invention E : earlier patent document, but published on, or after the filing date D : document cited in the application L : document cited for other reasons ..... & : member of the same patent family, corresponding document	

**ANNEX TO THE EUROPEAN SEARCH REPORT  
ON EUROPEAN PATENT APPLICATION NO.**

EP 00 95 7055

This annex lists the patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned European search report. The members are as contained in the European Patent Office EDP file on  
The European Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.

30-10-2002

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)		Publication date
EP 0644175	A	22-03-1995	AU	669525 B2	13-06-1996
			BR	9306495 A	15-09-1998
			DE	69326837 D1	25-11-1999
			DE	69326837 T2	20-04-2000
			EP	0644175 A1	22-03-1995
			KR	264536 B1	01-09-2000
			KR	264423 B1	16-08-2000
			RU	2139889 C1	20-10-1999
			AU	4089393 A	30-12-1993
			AU	695781 B2	20-08-1998
			AU	5088796 A	05-09-1996
			CN	1314419 A	26-09-2001
			CN	1080296 A , B	05-01-1994
			CN	1233620 A	03-11-1999
			CN	1233622 A	03-11-1999
			CN	1233621 A	03-11-1999
			EP	1059279 A1	13-12-2000
			ES	2141155 T3	16-03-2000
			WO	9324435 A1	09-12-1993
			JP	3240748 B2	25-12-2001
			JP	6234805 A	23-08-1994
			JP	3173684 B2	04-06-2001
			JP	6128578 A	10-05-1994
			JP	3163593 B2	08-05-2001
			JP	6234814 A	23-08-1994
			JP	3163594 B2	08-05-2001
			JP	6234815 A	23-08-1994
			RU	2182571 C2	20-05-2002
			SG	45359 A1	16-01-1998
			US	5399631 A	21-03-1995
			US	✓ 5449472 A	12-09-1995
			US	5616812 A	01-04-1997
			US	✓ 5518643 A	21-05-1996
			US	5523491 A	04-06-1996
			US	5589597 A	31-12-1996
			JP	3322281 B2	09-09-2002
			JP	6128184 A	10-05-1994
EP 0528043	A	24-02-1993	CA	2075956 A1	07-08-1992
			DE	69222998 D1	11-12-1997
			DE	69222998 T2	18-06-1998
			EP	0528043 A1	24-02-1993
			EP	0790293 A1	20-08-1997
			JP	5086382 A	06-04-1993
			WO	9213931 A1	20-08-1992
			KR	9701828 B1	17-02-1997

EPO FORM P0459

For more details about this annex : see Official Journal of the European Patent Office, No. 12/82

**ANNEX TO THE EUROPEAN SEARCH REPORT  
ON EUROPEAN PATENT APPLICATION NO.**

EP 00 95 7055

This annex lists the patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned European search report.  
The members are as contained in the European Patent Office EDP file on  
The European Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.

30-10-2002

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)		Publication date
US 5393856	A	28-02-1995	DE	4495867 T0	14-11-1996
			EP	0713497 A1	29-05-1996
			GB	2295618 A	05-06-1996
			JP	9501461 T	10-02-1997
			WO	9504762 A2	16-02-1995
-----					



P.B. 5818 - Patentlaan 2  
2280 HV Rijswijk (ZH)  
☎ +31 70 340 2040  
TX 31651 epo nl  
FAX +31 70 340 3016

Europäisches  
Patentamt

Zweigstelle  
in Den Haag  
Recherchen-  
abteilung

European  
Patent Office

Branch at  
The Hague  
Search  
division

Office européen  
des brevets

Département à  
La Haye  
Division de la  
recherche

Gille Hrabal Struck Neidlein Prop Roos  
Patentanwälte,  
Brucknerstrasse 20  
40593 Düsseldorf  
ALLEMAGNE

Gille Hrabal Struck Neidlein Prop Roos	
Eingang am: - 5. März 2003	
Frist:	
Vorfrist	

Datum/Date
03. 03. 03

Zeichen/Ref./Réf. T61 802-ok	Anmeldung Nr./Application No./Demande n°/Patent Nr./Patent No./Brevet n°. 00957055.7
Anmelder/Applicant/Demandeur/Patentinhaber/Proprietor/Titulaire IDEMITSU KOSAN COMPANY LIMITED	

## COMMUNICATION

The European Patent Office herewith transmits

- ☐ the European search report
- ☐ the declaration under Rule 45 EPC
- ☐ the partial European search report under Rule 45 EPC
- ☒ the supplementary European search report concerning the international application under Article 157(2) EPC relating to the above-mentioned European patent application. Copies of the documents cited in the search report are enclosed.

The following specifications given by the applicant have been approved by the Search Division :

- ☐ Abstract ☐ Title ☐ Figure
- ☐ The abstract was modified by the Search Division and the definitive text is attached to this communication.
- ☐ The following figure will be published with the abstract, since the Search Division considers that it better characterises the invention than the one indicated by the applicant.

Figure:

- ☒ Additional copy(copies) of the documents cited in the European search report.

## REFUND OF THE SEARCH FEE

If applicable under Article 10 Rules relating to fees, a separate communication from the Receiving Section on the refund of the search fee will be sent later.



EPO Form 1507 02.93

EPO Form 1507 02.93			



### CLAIMS INCURRING FEES

The present European patent application comprised at the time of filing more than ten claims.

☐ Only part of the claims have been paid within the prescribed time limit. The present European search report has been drawn up for the first ten claims and for those claims for which claims fees have been paid, namely claim(s):

☐ No claims fees have been paid within the prescribed time limit. The present European search report has been drawn up for the first ten claims.

### LACK OF UNITY OF INVENTION

The Search Division considers that the present European patent application does not comply with the requirements of unity of invention and relates to several inventions or groups of inventions, namely:

see sheet B

☒ All further search fees have been paid within the fixed time limit. The present European search report has been drawn up for all claims.

☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, the Search Division did not invite payment of any additional fee.

☐ Only part of the further search fees have been paid within the fixed time limit. The present European search report has been drawn up for those parts of the European patent application which relate to the inventions in respect of which search fees have been paid, namely claims:

☐ None of the further search fees have been paid within the fixed time limit. The present European search report has been drawn up for those parts of the European patent application which relate to the invention first mentioned in the claims, namely claims:



The Search Division considers that the present European patent application does not comply with the requirements of unity of invention and relates to several inventions or groups of inventions, namely:

Invention 1: claims 1-5 and 7-12 with respect to the polyvinyl ether,

Invention 2: claims 1, 3, 4, 6 and 8-10 with respect to the polyalkylene glycol,

Invention 3: claims 1, 3, 4, 6 and 8-10 with respect to the polyol ester,

Invention 4: claims 1, 3, 4, 6 and 8-10 with respect to the cyclic polyether, and

Invention 5: claims 1, 3, 4, 6 and 8-10 with respect to the carbonate compound.





European Patent  
Office

**SUPPLEMENTARY  
EUROPEAN SEARCH REPORT**

Application Number  
EP 00 95 7055

DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT			
Category	Citation of document with indication, where appropriate, of relevant passages	Relevant to claim	CLASSIFICATION OF THE APPLICATION (Int.Cl.7)
X	EP 0 644 175 A (IDEMITSU KOSAN CO) 22 March 1995 (1995-03-22) * page 17, line 50 - line 54; claim 20; examples 1-7, 7B, 7D-7H; tables * * page 18, line 4 - line 5 * * page 33, line 12 - line 26 * ---	1-12	C08F6/00 C08G64/40 C08G65/30 C10M107/24 C10M107/34 C08F16/12 C10M171/00 C10M105/38
X	US 4 677 231 A (AOSHIMA ATSUSHI ET AL) 30 June 1987 (1987-06-30) * column 3, line 43 - column 4, line 2; claims 2, 9; examples 16-27; table 2 * * column 6, line 47 - column 7, line 29 * Y * column 3, line 43 - line 56 *	1, 3, 4, 6, 8-10, 12	
Y	---	6, 8, 9	
X	EP 0 528 043 A (ASAHI CHEMICAL IND) 24 February 1993 (1993-02-24) * page 2, line 41 - line 56 * * page 22, line 1 - line 15 * * page 55, line 1 - line 20 * Y * page 2, line 41 - line 52 *	1, 3, 4, 6, 8-10, 12	
Y	---	6, 8, 9	
X	EP 0 779 289 A (KAO CORP) 18 June 1997 (1997-06-18) * abstract; claims * * examples PROD.EX4-6, 8, 9, 12, 14, SYNT.EX1, 2, 4-7 * * page 28, line 46 - line 47 * * page 29, line 2, 16, 30 * * page 52, line 31 - line 36 * ---	1, 3, 4, 6, 8-10, 12	TECHNICAL FIELDS SEARCHED (Int.Cl.7) C08F C10M C08G
X	EP 0 696 564 A (KAO CORP) 14 February 1996 (1996-02-14) * abstract; claims; examples EXAMPLES 1-1, 2, 3, 6, 7, 8-2, 9, 10, 13, 14, 15, 16; tables 1-3, 9, 10 * ---	1, 3, 4, 6, 8-10, 12	
	---	-/--	
The supplementary search report has been based on the last set of claims valid and available at the start of the search.			
Place of search MUNICH		Date of completion of the search 10 February 2003	Examiner Lohner, P
CATEGORY OF CITED DOCUMENTS X : particularly relevant if taken alone Y : particularly relevant if combined with another document of the same category A : technological background O : non-written disclosure P : intermediate document T : theory or principle underlying the invention E : earlier patent document, but published on, or after the filing date D : document cited in the application L : document cited for other reasons & : member of the same patent family, corresponding document			

1  
EPO FORM 1503 03.82 (P04C04)



European Patent  
Office

**SUPPLEMENTARY  
EUROPEAN SEARCH REPORT**

Application Number  
EP 00 95 7055

DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT			
Category	Citation of document with indication, where appropriate, of relevant passages	Relevant to claim	CLASSIFICATION OF THE APPLICATION (Int.Cl.7)
X	US 5 294 356 A (TAKAHATA KAZUNORI ET AL) 15 March 1994 (1994-03-15) * abstract; claims; examples 61,62; tables 4,5 * * column 6, line 12 - line 18 * * column 14, line 26 - line 33 * * column 27, line 49 - line 54 * * column 33, line 51 - line 62 *	1,3,4,6, 8-10,12	
A	US RE34914 E (MIZUI KINYA ET AL) 25 April 1995 (1995-04-25)		
			TECHNICAL FIELDS SEARCHED (Int.Cl.7)
The supplementary search report has been based on the last set of claims valid and available at the start of the search.			
Place of search <b>MUNICH</b>		Date of completion of the search <b>10 February 2003</b>	Examiner <b>Lohner, P</b>
<b>CATEGORY OF CITED DOCUMENTS</b>			
X : particularly relevant if taken alone Y : particularly relevant if combined with another document of the same category A : technological background O : non-written disclosure P : intermediate document T : theory or principle underlying the invention E : earlier patent document, but published on, or after the filing date D : document cited in the application L : document cited for other reasons & : member of the same patent family, corresponding document			

1

EPO FORM 1503 03.82 (P04C04)

# ANNEX TO THE EUROPEAN SEARCH REPORT ON EUROPEAN PATENT APPLICATION NO.

EP 00 95 7055

This annex lists the patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned European search report.  
The members are as contained in the European Patent Office EDP file on  
The European Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.

10-02-2003

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0644175      A	22-03-1995	AU 669525 B2	13-06-1996
		BR 9306495 A	15-09-1998
		DE 69326837 D1	25-11-1999
		DE 69326837 T2	20-04-2000
		EP 0644175 A1	22-03-1995
		KR 264536 B1	01-09-2000
		KR 264423 B1	16-08-2000
		RU 2139889 C1	20-10-1999
		AU 4089393 A	30-12-1993
		AU 695781 B2	20-08-1998
		AU 5088796 A	05-09-1996
		CN 1314419 A	26-09-2001
		CN 1080296 A ,B	05-01-1994
		CN 1233620 A	03-11-1999
		CN 1233622 A	03-11-1999
		CN 1233621 A	03-11-1999
		EP 1059279 A1	13-12-2000
		ES 2141155 T3	16-03-2000
		WO 9324435 A1	09-12-1993
		JP 3240748 B2	25-12-2001
		JP 6234805 A	23-08-1994
		JP 3173684 B2	04-06-2001
		JP 6128578 A	10-05-1994
		JP 3163593 B2	08-05-2001
		JP 6234814 A	23-08-1994
		JP 3163594 B2	08-05-2001
		JP 6234815 A	23-08-1994
		RU 2182571 C2	20-05-2002
		SG 45359 A1	16-01-1998
		US 5399631 A	21-03-1995
		US 5449472 A	12-09-1995
		US 5616812 A	01-04-1997
		US 5518643 A	21-05-1996
		US 5523491 A	04-06-1996
		US 5589597 A	31-12-1996
		JP 3322281 B2	09-09-2002
		JP 6128184 A	10-05-1994
US 4677231      A	30-06-1987	JP 1819528 C	27-01-1994
		JP 5030849 B	11-05-1993
		JP 61115934 A	03-06-1986
		JP 1048820 B	20-10-1989
		JP 1560336 C	31-05-1990
		JP 61118420 A	05-06-1986
		JP 1049413 B	24-10-1989
		JP 1560337 C	31-05-1990

EPO FORM P0459

For more details about this annex : see Official Journal of the European Patent Office, No. 12/82

# ANNEX TO THE EUROPEAN SEARCH REPORT ON EUROPEAN PATENT APPLICATION NO.

EP 00 95 7055

This annex lists the patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned European search report.  
The members are as contained in the European Patent Office EDP file on  
The European Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.

10-02-2003

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 4677231 A		JP 61123629 A	11-06-1986
		CA 1268481 A1	01-05-1990
		DE 3583988 D1	10-10-1991
		EP 0181621 A2	21-05-1986
		KR 8801518 B1	19-08-1988
EP 0528043 A	24-02-1993	CA 2075956 A1	07-08-1992
		DE 69222998 D1	11-12-1997
		DE 69222998 T2	18-06-1998
		EP 0528043 A1	24-02-1993
		EP 0790293 A1	20-08-1997
		JP 5086382 A	06-04-1993
		WO 9213931 A1	20-08-1992
		KR 9701828 B1	17-02-1997
EP 0779289 A	18-06-1997	EP 0779289 A1	18-06-1997
		JP 2973033 B2	08-11-1999
		KR 213525 B1	02-08-1999
		US 6096692 A	01-08-2000
		WO 9606839 A1	07-03-1996
EP 0696564 A	14-02-1996	DE 69506807 D1	04-02-1999
		DE 69506807 T2	02-06-1999
		EP 0696564 A1	14-02-1996
		JP 3059078 B2	04-07-2000
		JP 8104687 A	23-04-1996
		US 5720895 A	24-02-1998
		US 5869702 A	09-02-1999
		US 5922239 A	13-07-1999
US 5294356 A	15-03-1994	JP 2979526 B2	15-11-1999
		JP 4136031 A	11-05-1992
		JP 2901734 B2	07-06-1999
		JP 4139154 A	13-05-1992
		JP 4142330 A	15-05-1992
		JP 3151007 B2	03-04-2001
		JP 5032688 A	09-02-1993
		AT 175659 T	15-01-1999
		CA 2068878 A1	18-03-1992
		CN 1060478 A ,B	22-04-1992
		DE 69130760 D1	25-02-1999
		DE 69130760 T2	22-07-1999
		EP 0504410 A1	23-09-1992
		EP 0877013 A1	11-11-1998
		ES 2129410 T3	16-06-1999
		WO 9205140 A1	02-04-1992

**ANNEX TO THE EUROPEAN SEARCH REPORT  
ON EUROPEAN PATENT APPLICATION NO.**

EP 00 95 7055

This annex lists the patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned European search report.  
The members are as contained in the European Patent Office EDP file on  
The European Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.

10-02-2003

Patent document cited in search report		Publication date		Patent family member(s)	Publication date
US 5294356	A		KR	9508087 B1	25-07-1995
			US	5476602 A	19-12-1995
			US	5565129 A	15-10-1996
			JP	5032588 A	09-02-1993
-----					
US RE34914	E	25-04-1995	JP	2831400 B2	02-12-1998
			JP	3149295 A	25-06-1991
			AT	111951 T	15-10-1994
			AU	638291 B2	24-06-1993
			AU	6564890 A	09-05-1991
			BR	9005550 A	17-09-1991
			CA	2029174 A1	03-05-1991
			CN	1051385 A ,B	15-05-1991
			CS	9005410 A2	13-08-1991
			DE	69012738 D1	27-10-1994
			DE	69012738 T2	02-03-1995
			EP	0426153 A1	08-05-1991
			ES	2063227 T3	01-01-1995
			KR	9311931 B1	22-12-1993
			NZ	235913 A	23-12-1992
			RU	2080355 C1	27-05-1997
			US	5114605 A	19-05-1992
-----					

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2001年3月22日 (22.03.2001)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 01/19875 A1

(51) 国際特許分類: C08F 6/00, C08G 64/40, 65/30, C10M 107/24, 107/34 // C10N 20:00, 40:00

(21) 国際出願番号: PCT/JP00/06153

(22) 国際出願日: 2000年9月8日 (08.09.2000)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:  
特願平11/257205 1999年9月10日 (10.09.1999) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 出光興産株式会社 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒100-0005 東京都千代田区丸の内三丁目1番1号 Tokyo (JP). 協和油化株式会社 (KYOWA YUKA CO., LTD.) [JP/JP]; 〒100-8185 東京都千代田区大手町一丁目6番1号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 窪田峰行

(KUBOTA, Mineyuki) [JP/JP]. 鈴木和彦 (SUZUKI, Kazuhiko) [JP/JP]. 山崎広隆 (YAMAZAKI, Hirotaka) [JP/JP]; 〒299-0205 千葉県袖ヶ浦市上泉1280号 Chiba (JP). 吉元特行 (YOSHIMOTO, Tokuyuki) [JP/JP]. 小川明久 (OGAWA, Akihisa) [JP/JP]. 上森 茂 (KAMI-MORI, Shigeru) [JP/JP]; 〒510-0022 三重県四日市市大協町二丁目3番地 協和油化株式会社 四日市研究所内 Mie (JP).

(74) 代理人: 大谷 保 (OHTANI, Tamotsu); 〒105-0001 東京都港区虎ノ門3丁目8番27号 巴町アネックス2号館 4階 Tokyo (JP).

(81) 指定国 (国内): JP, US.

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

添付公開書類:  
— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: PROCESS FOR PRODUCING HIGH-PURITY OXYGENIC COMPOUND AND LUBRICATING OIL

(54) 発明の名称: 高純度含酸素化合物の製造方法及び潤滑油

(57) Abstract: A process for efficiently producing a high-purity oxygenic compound with a high volume resistivity; and a lubricating oil containing the high-purity oxygenic compound. The process, which is for producing a high-purity oxygenic compound selected from the group consisting of polyvinyl ether compounds, polyalkylene glycol compounds, polyol ester compounds, cyclic polyether compounds, and carbonate compounds, is characterized by comprising the step of treating with an adsorbent at least one crude oxygenic compound selected from the group consisting of crude polyvinyl ether compounds, crude polyalkylene glycol compounds, crude polyol ester compounds, crude cyclic polyether compounds, and crude carbonate compounds. The lubricating oil contains the high-purity oxygenic compound obtained by the process.

[続葉有]

WO 01/19875 A1

1007030 03102





---

(57) 要約:

体積固有抵抗の高い高純度含酸素化合物を効率よく製造する方法、及び該高純度含酸素化合物を含有する潤滑油を提供することを目的とする。

その構成は、ポリビニルエーテル系化合物、ポリアルキレングリコール系化合物、ポリオールエステル系化合物、環状ポリエーテル系化合物及びカーボネート系化合物よりなる群から選ばれる含酸素化合物の製造方法において、粗ポリビニルエーテル系化合物、粗ポリアルキレングリコール系化合物、粗ポリオールエステル系化合物、粗環状ポリエーテル系化合物及び粗カーボネート系化合物よりなる群から選ばれる少なくとも一種の粗含酸素化合物を吸着剤で処理する工程を含むことを特徴とする高純度含酸素化合物の製造方法、およびこの方法で得られる高純度含酸素化合物を含有する潤滑油である。

## 明 細 書

## 高純度含酸素化合物の製造方法及び潤滑油

技術分野

本発明は、高純度ポリビニルエーテル系化合物などの高純度含酸素化合物の製造方法及びこの方法により得られる高純度含酸素化合物を含有する潤滑油に関する。さらに詳しくは、本発明は、潤滑油、特に冷凍機用潤滑油の成分として好適な、体積固有抵抗の高い高純度含酸素化合物を吸着処理により効率よく製造する方法、及びこの方法により得られる高純度含酸素化合物を含有する体積固有抵抗を向上させた潤滑油、特に冷凍機用潤滑油に関するものである。

背景技術

一般に、圧縮型冷凍機は、圧縮機、凝縮器、膨張弁、蒸発器から構成され、冷媒と潤滑油の混合液体がこの密閉された系内を循環する構造となっている。このような圧縮型冷凍機においては、装置の種類にもよるが、一般に、圧縮機内では50℃以上の温度となる一方、冷却器内では-40℃程度の温度となるので、冷媒と潤滑油は、通常この-40℃から50℃の温度範囲で相分離することなく、この系内を循環することが必要である。もし、冷凍機の運転中に相分離が生じると、装置の寿命や効率に著しい悪影響を及ぼす。例えば、圧縮機部分で冷媒と潤滑油の相分離が生じると、可動部が潤滑不良となって、焼き付きなどを起こして装置の寿命を著しく短くし、一方蒸発器内で相分離が生じると、粘度の高い潤滑油が存在するため熱交換の効率低下をもたらす。

また、冷凍機用潤滑油は、冷凍機の可動部分を潤滑する目的で用いられることから、潤滑性能も当然重要となる。特に、圧縮機内は高温となるため、潤滑に必要な油膜を保持できる粘度が重要となる



。必要とされる粘度は使用する圧縮機の種類、使用条件により異なるが、通常、冷媒と混合する前の潤滑油の粘度（動粘度）は、40℃で5～1000 mm<sup>2</sup>/秒が好ましい。これより粘度が低いと油膜が薄くなり潤滑不良を起こしやすく、高いと熱交換の効率が低下する。

従来、圧縮型冷凍機の冷媒としては、フロン12（ジクロロジフルオロメタン）が多く用いられ、また潤滑油としては、前記の要求性能を満たす種々の鉱油や合成油が用いられてきた。しかしながら、フロン12を含むクロロフルオロカーボン（CFC）は、オゾン層を破壊するなど環境汚染をもたらすおそれがあることから、最近、世界的にその規制が厳しくなりつつある。そのため、新しい冷媒として水素含有フロン化合物であるハイドロフルオロカーボン（HFC）、ハイドロクロロフルオロカーボン（HCFC）が注目されるようになってきた。この水素含有フロン化合物、特にフロン134a（1, 1, 1, 2-テトラフルオロエタン）で代表されるハイドロフルオロカーボン（HFC）は、オゾン層を破壊するおそれがない上に、従来の冷凍機の構造をほとんど変更することなく、フロン12と代替が可能であるなど、圧縮型冷凍機用冷媒として好ましいものである。さらに、冷凍効率の問題から複数のHFCを混合した冷媒、大気の温暖化の観点から温暖化係数の低い炭酸ガス、炭化水素、エーテル、アンモニア等の冷媒も注目されている。

圧縮型冷凍機の冷媒として、フロン12の代わりに前記フロン134aなどの水素含有フロン化合物や炭酸ガス等の冷媒が採用されると、潤滑油としては、当然、このフロン134aなどの水素含有フロン化合物や炭酸ガス等との相溶性に優れ、かつ前記の要求性能を満たしうる潤滑性能に優れたものが要求される。しかし、従来の

フロン 12 と共に用いられてきた潤滑油は、フロン 134a などの水素含有フロン化合物や炭酸ガス等との相溶性が良好でないため、これらの化合物に適した新しい潤滑油が必要となる。この場合、特にフロン 12 の代替に際し、装置の構造をほとんど変化させないことが要望されており、潤滑油のために、現装置の構造を大きく変化させることは望ましいことではない。

このようなハイドロフルオロカーボン冷媒使用圧縮型冷凍機用潤滑油として、例えば含酸素化合物の一種であるポリビニルエーテル系化合物の使用が提案されている（特開平 6-234815 号公報、特開平 9-272886 号公報）。

ところで、電気冷蔵庫や空気調整機などにおいては、モーターとコンプレッサーが一体となっているため、その潤滑油には高い電気絶縁性が要求される。しかしながら、ポリビニルエーテル系化合物などの含酸素化合物は、製造時において、まれに極性物質や金属成分などが混入し、その体積固有抵抗が低下することがある。低下した体積固有抵抗を向上させる手段として、アルカリ洗浄や水洗などの処理方法が知られているが、その効果は必ずしも充分ではない。したがって、ポリビニルエーテル系化合物などの含酸素化合物の体積固有抵抗を向上させる新しい処理方法の開発が望まれていた。

#### 発明の開示

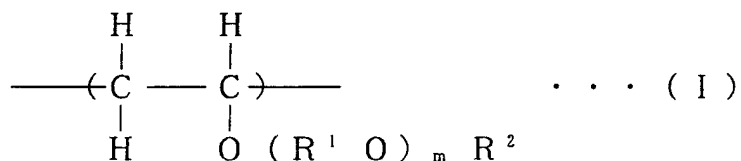
本発明は、このような状況下で、体積固有抵抗の高い高純度含酸素化合物を効率よく製造する方法、及びこの方法により得られる高純度含酸素化合物を含有する体積固有抵抗を向上させた潤滑油、特に冷凍機用潤滑油を提供することを目的とするものである。

本発明者らは、前記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、含酸素化合物を吸着剤で処理することにより、高い体積固有抵抗

をもつ高純度含酸素化合物が得られ、特に特定の構成単位を有する化合物を主成分として含む粗ポリビニルエーテル系化合物を吸着剤で処理することにより、 $10^{14} \Omega \cdot \text{cm}$ 以上（ $30^\circ\text{C}$ ）の高い体積固有抵抗をもつ高純度ポリビニルエーテル系化合物が得られること、そして、このものを含有する体積固有抵抗を向上させた潤滑油は、特に冷凍機用として好適であることを見出した。本発明は、かかる知見に基づいて完成したものである。

すなわち、本発明は、ポリビニルエーテル系化合物、ポリアルキレングリコール系化合物、ポリオールエステル系化合物、環状ポリエーテル系化合物及びカーボネート系化合物よりなる群から選ばれる含酸素化合物の製造方法において、粗ポリビニルエーテル系化合物、粗ポリアルキレングリコール系化合物、粗ポリオールエステル系化合物、粗環状ポリエーテル系化合物及び粗カーボネート系化合物よりなる群から選ばれる少なくとも一種の粗含酸素化合物を吸着剤で処理する工程を含むことを特徴とする高純度含酸素化合物の製造方法を提供する。更に詳細には、本発明は、

(1) 粗ポリビニルエーテル系化合物、例えば一般式 (I)



(式中、 $\text{R}^1$  は炭素数 1 ~ 10 の二価の分岐していてもよい炭化水素基、 $\text{R}^2$  は炭素数 1 ~ 20 の一価の分岐していてもよい炭化水素基、 $m$  はその平均値が 0 ~ 10 の数を示し、 $\text{R}^1 \text{O}$  が複数ある場合、複数の  $\text{R}^1 \text{O}$  はたがいに同一でも異なってもよく、また  $\text{R}^1$

、 $R^2$  及び  $m$  は、構成単位毎に同一でも異なってもよい。）  
 で表される構成単位を有する化合物を含む粗ポリビニルエーテル系  
 化合物を、吸着剤で処理する工程を含むことを特徴とする高純度含  
 酸素化合物（以下、高純度含酸素化合物 I と称する。）の製造方法

、  
 （２）粗ポリアルキレングリコール系化合物，粗ポリオールエステ  
 ル系化合物，粗環状ポリエーテル系化合物又は粗カーボネート系化  
 合物を、吸着剤で処理する工程を含むことを特徴とする高純度含酸  
 素化合物（以下、高純度含酸素化合物 II と称する。）の製造方法、

（３）上記（１）の製造方法で得られる高純度ポリビニルエーテル  
 系化合物を含有してなる潤滑油（以下、潤滑油 I と称する。）

及び（４）上記（２）の製造方法で得られた高純度のポリアルキレ  
 ングリコール系化合物，ポリオールエステル系化合物，環状ポリエ  
 ーテル系化合物及びカーボネート系化合物の中から選ばれる少なく  
 とも一種を含有してなる潤滑油（以下、潤滑油 II と称する。）

を提供するものである。

#### 発明を実施するための最良の形態

本発明の高純度含酸素化合物 I の製造方法においては、粗ポリビ  
 ニルエーテル系化合物を吸着剤で処理して精製するが、この際、粗  
 ポリビニルエーテル系化合物としては、一般式（I）



で表される構成単位を有する化合物を含むものが好ましく用いられ  
 る。

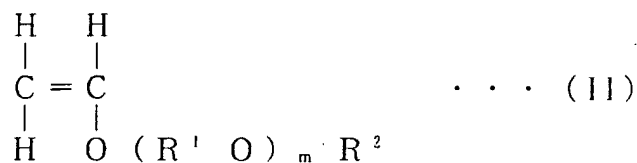
上記一般式 (I) において、 $R^1$  は炭素数 1 ~ 10 の二価の分岐していてもよい炭化水素基であって、直鎖、分岐状または環状の炭化水素基などが挙げられる。この  $R^1$  の具体例としては、メチレン基、エチレン基、トリメチレン基、メチルエチレン基、テトラメチレン基、1,1-ジメチルエチレン基、1,2-ジメチルエチレン基、ペンチレン基、ヘキシレン基、ヘプチレン基、オクチレン基、ノニレン基、デシレン基、シクロペンチレン基、シクロヘキシレン基、フェニレン基などが挙げられるが、これらの中で炭素数 2 及び 3 のアルキレン基が特に好適である。なお、一般式 (I) において、 $m$  は  $R^1$  O の繰返し数を示し、その平均値が 0 ~ 10、好ましくは 0 ~ 5 の範囲の数である。構成単位中に  $R^1$  O が複数ある場合には、複数の  $R^1$  O は同一であってもよく、異なってもよい。

一方、 $R^2$  は炭素数 1 ~ 20 の一価の分岐していてもよい炭化水素基であって、直鎖、分岐状または環状の炭化水素基などが挙げられる。この  $R^2$  の具体例としては、メチル基、エチル基、 $n$ -プロピル基、イソプロピル基、 $n$ -ブチル基、イソブチル基、 $sec$ -ブチル基、 $tert$ -ブチル基、各種ペンチル基、各種ヘキシル基、各種ヘプチル基、各種オクチル基、各種デシル基、各種ドデシル基などのアルキル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、各種メチルシクロヘキシル基、各種エチルシクロヘキシル基、各種ジメチルシクロヘキシル基などのシクロアルキル基などが挙げられる。

また上記  $R^1$ 、 $R^2$  及び  $m$  は、構成単位毎に同一でも異なってもよい。すなわち、一般式 (I) で表される構成単位は一種含まれていてもよく、二種以上含まれていてもよい。

本発明において用いられる粗ポリビニルエーテル系化合物は、対応するビニルエーテル系モノマーを単独重合又は共重合させること

により製造することができる。すなわち、一般式(II)



(式中、 $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$  及び  $m$  は前記と同じである。)

で表されるビニルエーテル系モノマーの一種又は二種以上を重合させることにより、製造することができる。

上記一般式(II)で表されるビニルエーテル系モノマーの例としては、ビニルメチルエーテル；ビニルエチルエーテル；ビニル- $n$ -プロピルエーテル；ビニルイソプロピルエーテル；ビニル- $n$ -ブチルエーテル；ビニルイソブチルエーテル；ビニル- $sec$ -ブチルエーテル；ビニル- $tert$ -ブチルエーテル；ビニル- $n$ -ペンチルエーテル；ビニル- $n$ -ヘキシルエーテル；ビニル-2-メトキシエチルエーテル；ビニル-2-エトキシエチルエーテル；ビニル-2-メトキシ-1-メチルエチルエーテル；ビニル-2-メトキシ-2-メチルエチルエーテル；ビニル-3,6-ジオキサヘプチルエーテル；ビニル-3,6,9-トリオキサデシルエーテル；ビニル-1,4-ジメチル-3,6-ジオキサヘプチルエーテル；ビニル-1,4,7-トリメチル-3,6,9-トリオキサデシルエーテル；ビニル-4-メトキシフェニルエーテルなどが挙げられる。これらのビニルエーテル系モノマーは公知の方法により製造することができる。

上記ビニルエーテル系モノマーを重合する方法としては、公知の方法、例えば村橋俊介・井本稔・谷久他編集「合成高分子III」（朝倉書店）昭和46年6月15日発行、初版」記載の方法によるラジ

カル重合、カチオン重合、放射線重合などが挙げられるが、以下に説明する方法を用いて重合することにより、所望の粘度の重合物が得られる。

重合の開始には、ブレンステッド酸類、ルイス酸類又は有機金属化合物類に対して、アルコール類、水、フェノール類、アセタール類、又はビニルエーテル類とカルボン酸との付加物を組み合わせたものを使用することができる。ブレンステッド酸類としては、例えばフッ化水素酸、塩化水素酸、臭化水素酸、ヨウ化水素酸、硝酸、硫酸、トリクロロ酢酸、トリフルオロ酢酸などが挙げられる。ルイス酸類としては、例えば三フッ化ホウ素、三塩化アルミニウム、三臭化アルミニウム、四塩化スズ、二塩化亜鉛、塩化第二鉄などが挙げられ、これらのルイス酸類の中では、特に三フッ化ホウ素及びその錯体類が好適である。また、有機金属化合物類としては、例えばジエチル塩化アルミニウム、エチル塩化アルミニウム、ジエチル亜鉛などが挙げられる。ブレンステッド酸類、ルイス酸類又は有機金属化合物類の使用量は、特に限定されないが、ビニルエーテル系モノマーに対して、0.001～10重量%であるのが好ましい。

これらと組み合わせる水、アルコール類、フェノール類、アセタール類又はビニルエーテル類とカルボン酸との付加物は、任意のものを選択することができ、これらの使用量は、特に限定されないが、ビニルエーテル系モノマーに対して、0.01～50重量%であるのが好ましい。

ポリマーの重合開始末端には、水、アルコール類、フェノール類を使用した場合は水素が結合し、アセタール類を使用した場合は使用したアセタール類から一方のアルコキシ基が脱離したものが結合する。またビニルエーテル類とカルボン酸との付加物を使用した場

合には、ビニルエーテル類とカルボン酸との付加物からカルボン酸部分由来のアルキルカルボニルオキシ基が脱離したものが結合する。一方、停止末端は、水、アルコール類、フェノール類、アセタール類を使用した場合には、アセタール、オレフィン又はアルデヒドとなる。またビニルエーテル類とカルボン酸との付加物を使用した場合は、ヘミアセタールのカルボン酸エステルとなる。このヘミアセタールのカルボン酸エステルを酸の存在下で加水分解するとアルデヒドになる。

上記一般式(II)で表されるビニルエーテル系モノマーの重合は、原料や開始剤の種類にもよるが、通常 $-80^{\circ}\text{C} \sim 150^{\circ}\text{C}$ の間で開始することができ、好ましくは $0 \sim 100^{\circ}\text{C}$ の範囲の温度で好適に行うことができる。重合反応は、反応開始後10秒から10時間程度で終了する。

この重合反応における分子量の調節については、上記一般式(II)で表されるビニルエーテル系モノマーに対し、該アルコール類、水、フェノール類、アセタール類及びビニルエーテル類とカルボン酸との付加物の量を多くすることで平均分子量の低いポリマーが得られる。さらに上記ブレンステッド酸類やルイス酸類の量を多くすることで平均分子量の低いポリマーが得られる。この分子量の調節により、重合物の粘度を調節することができる。

この重合反応は、溶媒を使用しないで行うことができるが、反応条件下に不活性な溶媒を使用することができる。この溶媒の種類については特に制限はないが、例えばヘキサン、ベンゼン、トルエン、イソオクタンなどの炭化水素系の溶媒、及びエチルエーテル、1,2-ジメトキシエタン、テトラヒドロフランなどのエーテル系の溶媒を好適に使用することができる。なお、この重合反応はアルカリ



を加えることによって停止することができる。

この反応により得られた重合物中には、通常不飽和結合、アセタール及び／又はアルデヒドが存在するために、公知の方法により、これらを飽和結合及びエーテルに変換する処理を行うのが好ましい。例えば、アセタール等をWO 96 / 3 3 1 5 4等に記載の方法により、ニッケル及びケイ素、アルミニウム、マグネシウム、チタン又はジルコニウムの酸化物等の存在下（例えば、ニッケル珪藻土などの存在下）、70～200℃で水素と反応させることにより、粗ポリビニルエーテル系化合物を得ることができる。

このようにして得られた粗ポリビニルエーテル系化合物は、重量平均分子量が150～3000であり、特に200～2000の範囲にあるものが好適である。

粗ポリビニルエーテル系化合物とは、ポリビニルエーテル系化合物及び不純物（例えば、金属化合物や極性物質等）を含み、その体積固有抵抗が $10^{14} \Omega \cdot \text{cm}$ 未満（30℃）であるものを意味する。

本発明においては、前記の粗ポリビニルエーテル系化合物を、吸着剤により処理する。この際、使用する吸着剤としては、例えばアルミニウム、鉄、チタン、ケイ素、スズなどの中から選ばれた少なくとも一種の金属の酸化物、粘土鉱物、活性炭及びイオン交換樹脂などを好ましく用いることができるが、これらの中で、活性炭、シリカーアルミナ、活性白土、ベントナイト、ゼオライト及び活性アルミナが、効果の点から好適である。この吸着剤は一種用いてもよく、二種以上を併用してもよい。

吸着剤による処理方法としては、粗ポリビニルエーテル系化合物と、その0.1～25重量％程度、好ましくは0.5～10重量％の吸

着剤とを通常  $0 \sim 100^{\circ}\text{C}$ 、好ましくは  $10 \sim 70^{\circ}\text{C}$  の温度において接触させる方法を用いることができる。ここで粗ポリビニルエーテル系化合物を吸着剤と接触させる方法には、吸着剤を充填塔に充填し、粗ポリビニルエーテル系化合物を通塔させてもよいし、バッチ式で行ってもよい。この際、必要に応じ、溶媒の存在下に処理を行ってもよい。この溶媒としては、例えばヘキサン、シクロヘキサン、ヘプタン、オクタン、イソノナン、トルエン、キシレンなどの炭化水素化合物のような無極性溶媒が好ましく、溶媒の使用量は、特に限定されないが、粗ポリビニルエーテル系化合物に対して、 $1 \sim 30$  倍量（重量）であるのが好ましい。

処理時間は処理温度、溶媒の有無、吸着剤の種類や量などにより左右され、一概に定めることはできないが、通常  $10$  分～ $10$  時間、好ましくは  $30$  分～ $5$  時間の範囲である。また、この処理は必要に応じ、窒素、アルゴン、ヘリウムなどの不活性ガス雰囲気下で行うことができる。

このような吸着剤による処理によって、体積固有抵抗が  $10^{14} \Omega \cdot \text{cm}$  以上（ $30^{\circ}\text{C}$ ）の高い電気絶縁性を有する高純度ポリビニルエーテル系化合物を得ることができ、一方、本発明の高純度含酸素化合物IIの製造方法においては、粗ポリアルキレングリコール系化合物、粗ポリオールエステル系化合物、粗環状ポリエーテル系化合物又は粗カーボネート系化合物を、吸着剤で処理して精製する。

粗ポリアルキレングリコール系化合物、粗ポリオールエステル系化合物、粗環状ポリエーテル系化合物又は粗カーボネート系化合物とは、ポリアルキレングリコール系化合物、ポリオールエステル系化合物、環状ポリエーテル系化合物又はカーボネート系化合物及び不純物（例えば、金属化合物や極性物質等）を含み、その体積固有

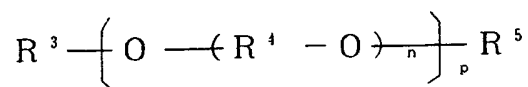
抵抗が  $10^{12} \Omega \cdot \text{cm}$  未満 ( $30^\circ\text{C}$ ) であるものを意味する。

粗ポリアルキレングリコール系化合物、粗ポリオールエステル系化合物、粗環状ポリエーテル系化合物又は粗カーボネート系化合物を吸着剤で処理することにより、その体積固有抵抗が  $10^{12} \Omega \cdot \text{cm}$  以上 ( $30^\circ\text{C}$ ) の高純度ポリアルキレングリコール系化合物、ポリオールエステル系化合物、環状ポリエーテル系化合物又はカーボネート系化合物を得ることができる。

この製造方法において使用する吸着剤の種類及び吸着剤による処理方法については、前記高純度含酸素化合物 I の製造方法において説明したのと同様である。

本発明の潤滑油 I は、前記のようにして処理された高純度ポリビニルエーテル系化合物を主成分とするものであり、一方、潤滑油 II は、前記のようにして処理された高純度のポリアルキレングリコール系化合物、ポリオールエステル系化合物、環状ポリエーテル系化合物及びカーボネート系化合物の中から選ばれた少なくとも一種の含酸素化合物を主成分とするものであって、これらの潤滑油 I 及び II は、特に冷凍機用として好適である。

ここでポリアルキレングリコール系化合物としては、一般式

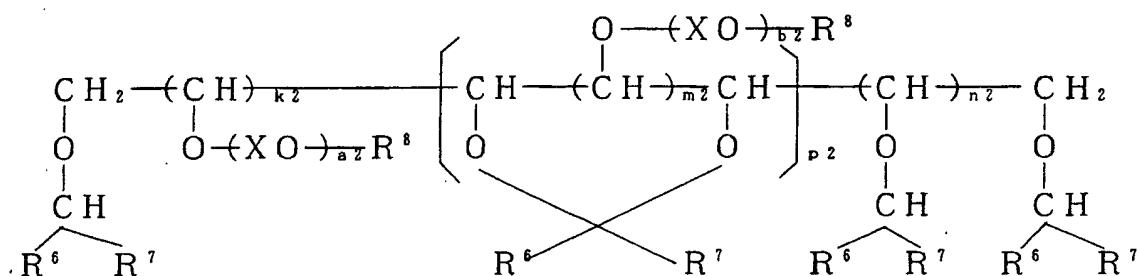


(式中、 $\text{R}^3$  は 1 ～ 6 価のアルコール残基を示し、 $\text{R}^4$  は炭素数 2 ～ 4 のアルキレン基を示し、 $\text{R}^5$  は水素または炭素数 1 ～ 10 のアルキル基またはアシル基を示す。また、 $n$  は 1 ～ 80、 $p$  は 1 ～ 6 を示す。)

で表される化合物を挙げることができる。

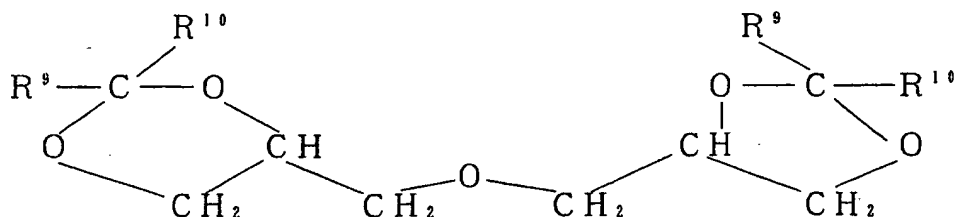
ポリオールエステル系化合物としては、2価～4価のアルコール、具体的には、ネオペンチルグリコール、トリメチロールプロパン、トリメチロールエタン又はペンタエリスリトールと炭素数2～18の直鎖又は分岐カルボン酸のエステルなどがある。

環状ポリエーテル系化合物としては、一般式

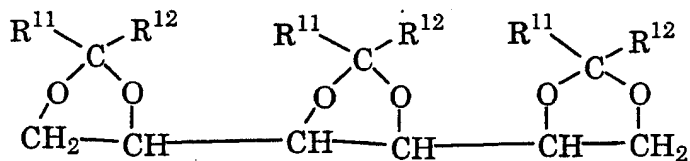


(式中、 $R^6$  は水素原子または炭素数1～21の直鎖もしくは分岐のアルキル基であり、 $R^7$  は $R^6$  が水素原子の場合は炭素数3～21の分岐アルキル基を示し、 $R^6$  が炭素数1～21の直鎖もしくは分岐のアルキル基の場合は炭素数1～21の直鎖もしくは分岐のアルキル基を示す。あるいは $R^6$ 、 $R^7$  は一緒になって炭素数2～13のアルキレン基を形成する。 $R^6$ 、 $R^7$  の各組は同一でも異なってもよい。 $R^8$  は水素原子または炭素数1～8の直鎖もしくは分岐のアルキル基を示す。 $X$ は炭素数2～4の直鎖もしくは分岐のアルキレン基を示す。 $k_2$  は0～4、 $n_2$  は0～3、 $p_2$  は0～2、 $m_2$  は0もしくは1であって $k_2 + (m_2 + 2)p_2 + n_2 = 4$ を満たす数である。 $a_2$ 、 $b_2$  は0～20で $0 < a_2 k_2 + b_2 m_2 p_2 \leq 20$ を満たす数である。 $k_2$  個のポリオキシアルキレンオキシメチレン基と $n_2$  個のアルキルオキシメチレン基と $p_2$  個の環状アセタール類(アセタールもしくはケタール)ユニットの配列は

ランダムでもブロックでもよい)で表される多価エーテルアルコールのアルキレンオキサイド付加誘導体、あるいは一般式



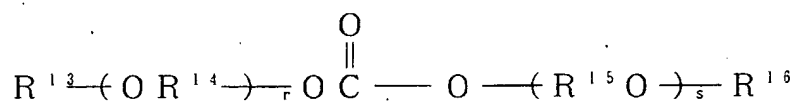
(式中、 $R^9$  は水素原子を示し、その場合、 $R^{10}$  は炭素数 3 ~ 21 の直鎖もしくは分岐のアルキル基を示す。あるいは  $R^9$  はメチル基を示し、その場合、 $R^{10}$  は炭素数 3 ~ 21 の直鎖もしくは分岐のアルキル基を示す。または  $R^9$  は炭素数 2 ~ 21 の直鎖もしくは分岐のアルキル基を示し、その場合、 $R^{10}$  は炭素数 2 ~ 21 の直鎖もしくは分岐のアルキル基を示す。) 又は一般式



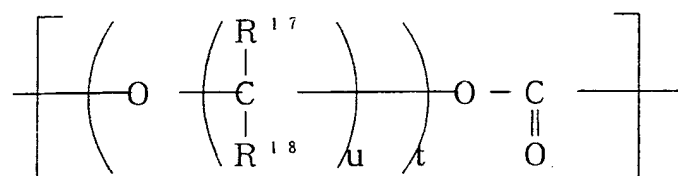
(式中  $R^{11}$ ,  $R^{12}$  は水素原子または炭素数 1 ~ 21 の直鎖もしくは分岐のアルキル基を示す。ただし、 $R^{11}$  と  $R^{12}$  が同時に水素原子となることはない。)

で表される環状アセタール類を挙げることができる。

カーボネート系化合物としては、一般式



(式中  $R^{13}$ ,  $R^{16}$  はそれぞれ炭素数 1 ~ 20 の一価の炭化水素基、 $R^{14}$ ,  $R^{15}$  はそれぞれ炭素数 1 ~ 10 のアルキレン基、 $r$ ,  $s$  はそれぞれ 1 ~ 100 の整数を示す。) で表される化合物、あるいは一般式



(式中  $R^{17}$ ,  $R^{18}$  はそれぞれ水素, 炭素数 1 ~ 6 のアルキル基, 炭素数 6 ~ 10 のアリール基, 炭素数 7 ~ 10 のアリールアルキル基あるいは炭素数 2 ~ 6 のアルコキシアルキル基を示す。 $u$  は 2 ~ 10 の整数を示し、 $t$  は 1 ~ 100 の整数を示す。) で表される構成単位を有する化合物を挙げることができる。

高純度含酸素化合物 I 又は II を冷凍機用として用いる場合、冷媒と混合する前の潤滑油の動粘度は、40℃で 5 ~ 1000 mm<sup>2</sup>/秒が好ましく、特に 5 ~ 200 mm<sup>2</sup>/秒が好ましい。なお、上記動粘度範囲外のポリマーでも、他の動粘度のポリマーと混合することで、上記動粘度範囲内に粘度調整することも可能である。

また、冷媒としてはオゾン層を破壊するおそれの少ないハイドロフルオロカーボン (HFC) が好適に使用され、特に冷凍効率を向上させた複数の HFC を混合した冷媒が好ましい。さらには大気の温暖化の観点から温暖化係数の低い炭酸ガス, 炭化水素, エーテル, アンモニア等も好適に使用され得る。

本発明の潤滑油 I では、上記の高純度ポリビニルエーテル系化合物を単独で用いてもよく、また二種以上組み合わせて用いてもよい。更に、他の潤滑油と混合して用いることもできる。

一方、本発明の潤滑油 II では、上記高純度のポリアルキレングリコール系化合物、ポリオールエステル系化合物、環状ポリエーテル系化合物及びカーボネート系化合物を、それぞれ一種用いてもよく、またこれらの化合物の中から二種以上を適当に選り組み合わせて用いてもよい。さらに、他の潤滑油、例えば鉱油、アルキルベンゼン、ポリアルファオレフィンなどと混合して用いることもできる。

また、本発明の潤滑油 I, II には、従来の潤滑油に使用されている各種添加剤、例えば耐荷重添加剤、塩素捕捉剤、酸化防止剤、金属不活性化剤、消泡剤、清浄分散剤、粘度指数向上剤、油性剤、耐摩耗添加剤、極圧剤、防錆剤、腐食防止剤、流動点降下剤などを所望に応じて添加することができる。

次に、本発明を実施例により、さらに詳しく説明するが、本発明は、これらの例によってなんら限定されるものではない。

#### 触媒調製例 1

S U S - 3 1 6 L 製 2 リットル容オートクレーブに、ニッケル珪藻土触媒（日揮化学社製、商品名 N 1 1 3）12 g 及びイソオクタン 300 g を仕込んだ。オートクレーブ内を窒素置換し、次いで水素置換したのち、水素圧を 30 k g / c m<sup>2</sup> G として昇温し、140℃で30分間保持後、室温まで冷却した。オートクレーブ内を窒素置換したのち、オートクレーブにアセトアルデヒドジエチルアセタール 20 g を加え、再び窒素置換し、次いで水素置換後、水素圧を 30 k g / c m<sup>2</sup> G として昇温した。130℃で30分間保持後、室温まで冷却した。昇温によりオートクレーブ内の圧力が上昇す

る一方、アセトアルデヒドジエチルアセタールが反応することにより、水素圧力の減少が認められた。圧力が減少し、 $30 \text{ kg/cm}^2 \text{ G}$ 以下となった場合は水素を足し、 $30 \text{ kg/cm}^2 \text{ G}$ とした。室温まで冷却後脱圧し、次いで、オートクレーブ内を窒素置換した。

#### 実施例 1

##### (1) 粗ポリビニルエーテル系化合物の製造

1 リットル容ガラス製セパラブルフラスコに、トルエン  $148.2 \text{ g}$ 、エタノール  $27.38 \text{ g}$  ( $5.94 \times 10^{-1}$  モル)、イソブタノール  $4.90 \text{ g}$  ( $6.6 \times 10^{-2}$  モル) 及び三フッ化ホウ素ジエチルエーテル錯体  $0.260 \text{ g}$  を仕込んだ。次いで、エチルビニルエーテル  $465.83 \text{ g}$  ( $6.460$  モル) 及びイソブチルビニルエーテル  $71.89 \text{ g}$  ( $7.18 \times 10^{-1}$  モル) の混合物を 5 時間かけて加えた。反応により発熱があるため、フラスコを氷水浴につけ反応液を  $25^\circ\text{C}$  に保持した。

その後、反応液を 2 リットル洗浄槽に移し、3 重量% 水酸化ナトリウム水溶液  $200$  ミリリットルで 2 回、次いで蒸留水  $200$  ミリリットルで 3 回洗浄したのち、ロータリーエバポレーターを用いて減圧下に溶媒及び軽質分を除去し、粗製物  $550.0 \text{ g}$  を得た。

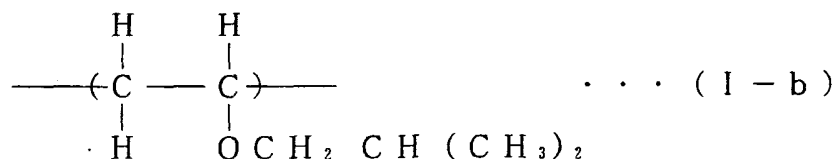
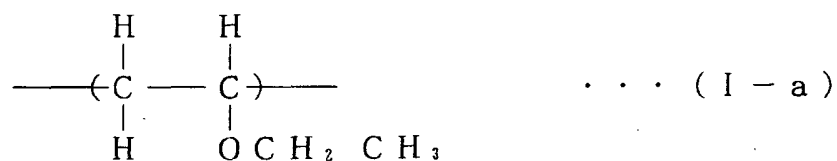
次に、触媒調製例 1 と同様にして調製した触媒入りオートクレーブを開放し、液層をデカンテーションで除去したのち、上記粗製物  $400 \text{ g}$  を入れた。オートクレーブ内を窒素置換し、次いで水素置換したのち、水素圧を  $30 \text{ kg/cm}^2 \text{ G}$  とし昇温した。 $140^\circ\text{C}$  で 2 時間保持したのち、室温まで冷却した。昇温によりオートクレーブ内の圧力が上昇する一方、反応の進行により水素圧力の減少が認められた。水素圧力が減少した場合、適時水素を加えオートクレ



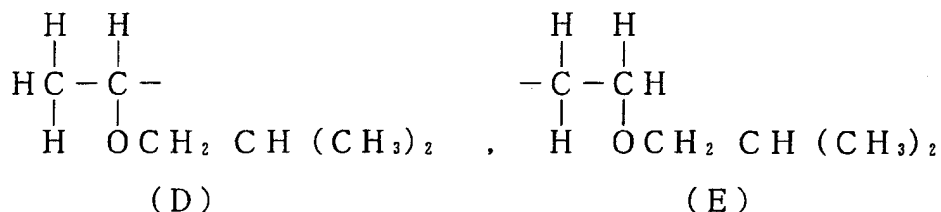
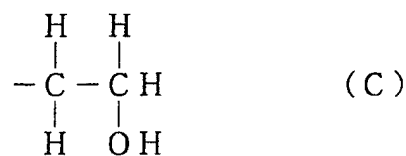
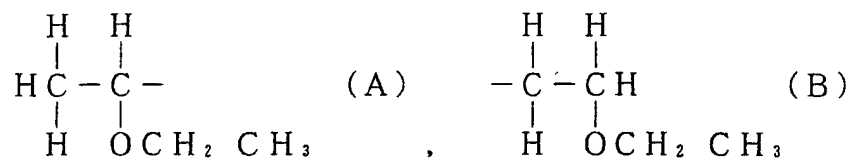
ープ内を  $30 \text{ kg/cm}^2 \text{ G}$  とした。

オートクレーブ内を窒素置換したのち、脱圧し、反応液を回収してイソオクタン  $100 \text{ g}$  を加え、ろ過して触媒を取り除いた。ろ液をロータリーエバポレータで減圧下に処理して溶媒及び軽質分を除去した。収量は  $362 \text{ g}$  であった。

このようにして得られた粗ポリビニルエーテル系化合物は、下記の構成単位 (I-a) / (I-b) モル比が  $9/1$  のものであり、 $40^\circ\text{C}$  での動粘度が  $68.86 \text{ mm}^2/\text{秒}$ 、 $100^\circ\text{C}$  での動粘度が  $8.26 \text{ mm}^2/\text{秒}$ 、 $30^\circ\text{C}$  における体積固有抵抗が  $3.26 \times 10^{13} \Omega \cdot \text{cm}$  であった。



さらに、NMR分析及びIR分析の結果、ポリマーの末端構造の一方が (A) 又は (D) で、もう一方は大部分が (B) 又は (E) であり、かつ5重量%以下の (C) が含まれていた。



## (2) 粗ポリビニルエーテル系化合物の精製

上記(1)で得られた粗ポリビニルエーテル系化合物150gをイソノナン300gに溶解し、50℃に加熱した。この溶液を攪拌しながら、これにシリカアルミナHA（触媒化成工業社製）4.5gを加え、窒素雰囲気下、50℃で1時間加熱攪拌した。

次いで、メンブランフィルターを用いてシリカアルミナをろ過により除去したのち、エバポレーターを用いて、母液から溶媒を除去した。

このようにして得られた精製ポリビニルエーテル系化合物の30℃における体積固有抵抗は $1.87 \times 10^{15} \Omega \cdot \text{cm}$ であった。

なお、体積固有抵抗は、以下に示す要領で測定した。

<体積固有抵抗の測定>

試料を減圧下 ( $0.3 \sim 0.8 \text{ mmHg}$ )  $100^\circ\text{C}$  で1時間乾燥させた後、 $30^\circ\text{C}$  の恒温槽中の体積固有抵抗測定用の液体セルに封入した。40分間  $30^\circ\text{C}$  の恒温槽に保持した後、アドバンテスト社製 R8340 超絶縁計を用い、印加電圧  $250 \text{ V}$  で測定した。

#### 実施例 2

実施例 1 (1) と同様にして製造した構成単位 (I-a) / (I-b) モル比が  $9/1$  の粗ポリビニルエーテル系化合物 ( $30^\circ\text{C}$  における体積固有抵抗  $1.30 \times 10^{13} \Omega \cdot \text{cm}$ )  $150 \text{ g}$  をイソノナン  $300 \text{ g}$  に溶解した。この溶液を攪拌しながら、これにシリカーアルミナ HA (触媒化成工業社製)  $4.5 \text{ g}$  を加え、窒素雰囲気下、 $15^\circ\text{C}$  で1時間攪拌した。

次いで、メンブランフィルターを用いてシリカーアルミナをろ過により除去したのち、エバポレーターを用いて、母液から溶媒を留去した。

このようにして得られた精製ポリビニルエーテル系化合物の  $30^\circ\text{C}$  における体積固有抵抗は  $8.33 \times 10^{14} \Omega \cdot \text{cm}$  であった

#### 実施例 3

実施例 1 において、イソノナンの代わりにヘキサンを用いた以外は、実施例 1 と同様にして実施した。結果を第 1 表に示す。

#### 実施例 4

実施例 1 において、イソノナンの代わりにトルエンを用いた以外は、実施例 1 と同様にして実施した。結果を第 1 表に示す。

#### 実施例 5

実施例 1 (1) と同様にして製造した構成単位 (I-a) / (I-b) モル比が  $9/1$  の粗ポリビニルエーテル系化合物 ( $30^\circ\text{C}$  における体積固有抵抗  $1.10 \times 10^{12} \Omega \cdot \text{cm}$ )  $150 \text{ g}$  をトルエン

150 g に溶解した。この溶液を攪拌しながら、これにシリカーアルミナ H A (触媒化成工業社製) 1.5 g を加え、窒素雰囲気下、15℃で1時間攪拌した。

次いで、メンブランフィルターを用いてシリカーアルミナをろ過により除去したのち、エバポレーターを用いて、母液から溶媒を除去した。

このようにして得られた精製ポリビニルエーテル系化合物の30℃における体積固有抵抗は $1.57 \times 10^{14} \Omega \cdot \text{cm}$ であった

#### 実施例 6

実施例 1 (1) と同様にして製造した構成単位 (I-a) / (I-b) モル比が 9 / 1 の粗ポリビニルエーテル系化合物 (30℃における体積固有抵抗 $1.65 \times 10^{12} \Omega \cdot \text{cm}$ ) 150 g を無溶媒で50℃に加熱した。これを攪拌しながら、シリカーアルミナ H A (触媒化成工業社製) 4.5 g を加え、窒素雰囲気下、50℃で1時間加熱攪拌した。

次いで、メンブランフィルターを用いてシリカーアルミナをろ過により除去した。

このようにして得られた精製ポリビニルエーテル系化合物の30℃における体積固有抵抗は $3.33 \times 10^{14} \Omega \cdot \text{cm}$ であった

#### 実施例 7 ~ 12

実施例 1 において、シリカーアルミナ H A の代わりに、第 1 表 - 1 に示す吸着剤を用いた以外は、実施例 1 と同様にして実施した。結果を第 1 表 - 2 に示す。

#### 実施例 13

##### (1) 粗ポリビニルエーテル系化合物の製造

1 リットル容ガラス製セパラブルフラスコに、イソオクタン 12

5 g, イソブタノール 59.42 g ( $8.02 \times 10^{-1}$  モル) 及び三フッ化ホウ素ジエチルエーテル錯体 0.316 g を仕込んだ。次いで、エチルビニルエーテル 438.58 g (6.082 モル) 及びイソブチルビニルエーテル 71.99 g ( $7.19 \times 10^{-1}$  モル) の混合物を 5 時間かけて加えた。反応により発熱があるため、フラスコを氷水浴につけ反応液を 45℃ に保持した。

その後、反応液を 2 リットル洗浄槽に移し、3 重量% 水酸化ナトリウム水溶液 200 ミリリットルで 2 回、次いで蒸留水 200 ミリリットルで 3 回洗浄したのち、ロータリーエバポレーターを用いて減圧下に溶媒及び軽質分を除去し、粗製物 534.1 g を得た。

次に触媒調製例 1 と同様にして調製した触媒入りオートクレーブを開放し、液層をデカンテーションで除去したのち、上記粗製物 400 g を入れた。オートクレーブ内を窒素置換、次いで水素置換したのち、水素圧を  $30 \text{ kg/cm}^2 \text{ G}$  とし昇温した。140℃ で 2 時間保持したのち、室温まで冷却した。昇温によりオートクレーブ内の圧力が上昇する一方、反応の進行により水素圧力の減少が認められた。水素圧力が減少した場合、適時水素を加えオートクレーブ内を  $30 \text{ kg/cm}^2 \text{ G}$  とした。

オートクレーブ内を窒素置換したのち、脱圧し、反応液を回収してイソオクタン 100 g を加え、ろ過して触媒を取り除いた。ろ液をロータリーエバポレータで減圧下に処理して溶媒及び軽質分を除去した。収量は 359 g であった。

このようにして得られた粗ポリビニルエーテル系化合物は、構成単位 (I-a) / (I-b) モル比が 8 / 2 のものであり、40℃ での動粘度が  $32.54 \text{ mm}^2 / \text{秒}$ 、100℃ での動粘度が  $5.14 \text{ mm}^2 / \text{秒}$ 、30℃ における体積固有抵抗が  $1.32 \times 10^{13} \Omega \cdot \text{cm}$

であった。

さらに、NMR分析及びIR分析の結果、ポリマーの末端構造の一方が(A)又は(D)で、もう一方は大部分が(B)又は(E)であり、かつ5重量%以下の(C)が含まれていた。

#### (2) 粗ポリビニルエーテル系化合物の精製

上記(1)で得られた粗ポリビニルエーテル系化合物を、実施例1(2)と同様にして精製した。

得られた精製ポリビニルエーテル系化合物の30℃における体積固有抵抗は $1.28 \times 10^{14} \Omega \cdot \text{cm}$ であった。

#### 実施例14

##### (1) 粗ポリビニルエーテル系化合物の製造

1リットル容ガラス製セパラブルフラスコに、トルエン125g、イソブタノール60.65g ( $8.18 \times 10^{-1}$ モル)及び三フッ化ホウ素ジエチルエーテル錯体0.322gを仕込んだ。次いで、エチルビニルエーテル370.66g (5.140モル)及びイソブチルビニルエーテル138.70g (1.385モル)の混合物を5時間かけて加えた。反応により発熱があるため、フラスコを氷水浴につけ反応液を45℃に保持した。

その後、反応液を2リットル洗浄槽に移し、3重量%水酸化ナトリウム水溶液200ミリリットルで2回、次いで蒸留水200ミリリットルで3回洗浄したのち、ロータリーエバポレーターを用いて減圧下に溶媒及び軽質分を除去し、粗製物528.4gを得た。

次に触媒調製例1と同様にして調製した触媒入りオートクレーブを解放し、液層をデカンテーションで除去したのち、上記粗製物400gを入れた。オートクレーブ内を窒素置換、次いで水素置換したのち、水素圧を30kg/cm<sup>2</sup>Gとし昇温した。140℃で2

時間保持したのち、室温まで冷却した。昇温によりオートクレーブ内の圧力が上昇する一方、反応の進行により水素圧力の減少が認められた。水素圧力が減少した場合、適時水素を加えオートクレーブ内を  $30 \text{ kg/cm}^2 \text{ G}$  とした。

オートクレーブ内を窒素置換したのち、脱圧し、反応液を回収してイソオクタン  $100 \text{ g}$  を加え、ろ過して触媒を取り除いた。ろ液をロータリーエバポレータで減圧下に処理して溶媒及び軽質分を除去した。収量は  $358 \text{ g}$  であった。

このようにして得られた粗ポリビニルエーテル系化合物は、構成単位 (I-a) / (I-b) モル比が  $7/3$  のものであり、 $40^\circ\text{C}$  での動粘度が  $29.65 \text{ mm}^2/\text{秒}$ 、 $100^\circ\text{C}$  での動粘度が  $4.77 \text{ mm}^2/\text{秒}$ 、 $30^\circ\text{C}$  における体積固有抵抗が  $5.60 \times 10^{14} \Omega \cdot \text{cm}$  であった。

さらに、NMR 分析及び IR 分析の結果、ポリマーの末端構造の一方が (A) 又は (D) で、もう一方は大部分が (B) 又は (E) であり、かつ 5 重量%以下の (C) が含まれていた。

## (2) 粗ポリビニルエーテル系化合物の精製

上記 (1) で得られた粗ポリビニルエーテル系化合物を、実施例 1 (2) と同様にして精製した。

得られた精製ポリビニルエーテル系化合物の  $30^\circ\text{C}$  における体積固有抵抗は  $2.46 \times 10^{15} \Omega \cdot \text{cm}$  であった。

## 実施例 15

### (1) 粗ポリビニルエーテル系化合物の製造

滴下ロート、冷却管及び攪拌機を取り付けた  $1000 \text{ ミリリットル}$  ガラス製フラスコにトルエン  $200 \text{ g}$ 、アセトアルデヒドジメトキシエチルアセタール  $42.6 \text{ g}$  および三フッ化ホウ素ジエチルエー

テル錯体0.90 gを入れた。滴下ロートにメトキシエチルビニルエーテル224 gを入れ50分で滴下した。反応熱により、反応液の温度が上昇するが、氷水浴で冷却しながら約25℃に保った。滴下終了後5分間攪拌した。反応混合物を洗浄槽に移し、クロロホルム400ミリリットルを加え、5重量%水酸化ナトリウム水溶液200ミリリットルで3回洗浄し、さらに、水300ミリリットルで3回洗浄した。ロータリーエバポレーターを用い減圧下溶媒及び未反応原料を除去し粗製品258 gを得た。その粗製品の40℃での動粘度は33.3 mm<sup>2</sup>/秒であった。

SUS-316L製2リットルオートクレーブに粗製品220 g、ヘキサン600 g、ラネーニッケル11.0 g、ゼオライト11.0 gを入れた。オートクレーブ内に水素を導入し、水素圧20 kg/cm<sup>2</sup>とし、約30秒間攪拌したのち脱圧した。再びオートクレーブ内に水素を導入し、水素圧20 kg/cm<sup>2</sup>とし、約30秒間攪拌した後脱圧した。この操作をさらに一回行った後、水素圧50 kg/cm<sup>2</sup>としながら、30分で130℃に昇温した。130℃で2時間反応した。昇温中及び昇温後反応が起こり、水素圧の減少が認められた。なお、昇温に伴う圧力の増加、反応に伴う圧力の減少は適時減圧、加圧して水素圧を60 kg/cm<sup>2</sup>として反応を行った。反応終了後室温まで冷却し常圧まで減圧した。1時間静置し触媒を沈降させ反応液をデカンテーションで分離した。触媒をヘキサン60ミリリットルで2回洗浄し洗浄液は反応液と合わせ、ろ紙を用いてろ過を行った。ロータリーエバポレーターを用い減圧下、ヘキサンを除去し、クロロホルム400ミリリットルを加えたのち、洗浄槽に移し、5重量%水酸化ナトリウム水溶液200ミリリットルで3回洗浄、次いで蒸留水300ミリリットルで5回洗浄した。



ロータリーエバポレーターを用い減圧下、溶媒、水分等を除去した。収量は188gであった。

このようにして得られた粗ポリビニルエーテル系化合物は、構成単位 (I-c)



を有するものであり、40℃での動粘度が30.4 mm<sup>2</sup>/秒、100℃での動粘度が6.29 mm<sup>2</sup>/秒、30℃における体積固有抵抗が2.50 × 10<sup>12</sup> Ω・cmであった。

#### (2) 粗ポリビニルエーテル系化合物の精製

上記(1)で得られた粗ポリビニルエーテル系化合物を、実施例1(2)と同様にして精製した。

得られた精製ポリビニルエーテル系化合物の30℃における体積固有抵抗は1.50 × 10<sup>14</sup> Ω・cmであった。

これら実施例1～15の結果を、まとめて第1表に示す。

第 1 表 - 1

		ポリビニルエーテル系化合物		吸着剤の種類
		構成単位	モル比	
実 施 例	1	(I-a)/(I-b)	9 / 1	シリカーアルミナ H A
	2	(I-a)/(I-b)	9 / 1	シリカーアルミナ H A
	3	(I-a)/(I-b)	9 / 1	シリカーアルミナ H A
	4	(I-a)/(I-b)	9 / 1	シリカーアルミナ H A
	5	(I-a)/(I-b)	9 / 1	シリカーアルミナ H A
	6	(I-a)/(I-b)	9 / 1	シリカーアルミナ H A
	7	(I-a)/(I-b)	9 / 1	シリカーアルミナ L A
	8	(I-a)/(I-b)	9 / 1	活性白土
	9	(I-a)/(I-b)	9 / 1	C a 型ベントナイト
	10	(I-a)/(I-b)	9 / 1	活性炭 A
	11	(I-a)/(I-b)	9 / 1	活性炭 B
	12	(I-a)/(I-b)	9 / 1	活性炭 C
	13	(I-a)/(I-b)	8 / 2	シリカーアルミナ H A
	14	(I-a)/(I-b)	7 / 3	シリカーアルミナ H A
	15	(I-c)	—	シリカーアルミナ H A

注)

シリカーアルミナ H A , L A : 触媒化成工業社製

活性白土 : 水沢化学工業社製「ガレオンアース N S」

C a 型ベントナイト : クニミネ工業社製「K B」

活性炭 A : 日本ノリット社製「C A 1」

活性炭 B : 日本ノリット社製「S A P l u s」

活性炭 C : 日本ノリット社製「S-51」

吸着剤の使用量 : ポリビニルエーテル系化合物に対し、実施例 5 は 1 重量%、その他は 3 重量%である。

溶媒の使用量 : ポリビニルエーテル系化合物に対し、実施例 5 は等重量、その他は 2 倍重量である。

第 1 表-2

		吸着条件		30℃における体積固有抵抗 ( $\Omega \cdot \text{cm}$ )	
		溶媒	温度 (℃)	吸着処理前	吸着処理後
実 施 例	1	イソナン	50	$3.26 \times 10^{13}$	$1.87 \times 10^{15}$
	2	イソナン	15	$1.30 \times 10^{13}$	$8.33 \times 10^{14}$
	3	ヘキサン	50	$3.26 \times 10^{13}$	$5.83 \times 10^{14}$
	4	トルエン	50	$3.26 \times 10^{13}$	$4.48 \times 10^{14}$
	5	トルエン	15	$1.10 \times 10^{12}$	$1.57 \times 10^{14}$
	6	無溶媒	50	$1.65 \times 10^{12}$	$3.33 \times 10^{14}$
	7	イソナン	50	$3.26 \times 10^{13}$	$3.15 \times 10^{14}$
	8	イソナン	50	$3.26 \times 10^{13}$	$2.46 \times 10^{14}$
	9	イソナン	50	$3.26 \times 10^{13}$	$3.56 \times 10^{14}$
	10	イソナン	50	$3.26 \times 10^{13}$	$2.40 \times 10^{14}$
	11	イソナン	50	$3.26 \times 10^{13}$	$5.22 \times 10^{14}$
	12	イソナン	50	$3.26 \times 10^{13}$	$5.60 \times 10^{14}$
	13	イソナン	50	$1.32 \times 10^{13}$	$1.28 \times 10^{14}$
	14	イソナン	50	$5.60 \times 10^{14}$	$2.46 \times 10^{15}$
	15	イソナン	50	$2.50 \times 10^{12}$	$1.50 \times 10^{14}$

## 比較例 1

実施例 (1) と同様にして製造した構成単位 (I-a) / (I-b) モル比が 9 / 1 の粗ポリビニルエーテル系化合物 (30℃における体積固有抵抗  $1.65 \times 10^{12} \Omega \cdot \text{cm}$ ) 150 g をヘキサン 300 g に溶解し、さらに 3 重量% 水酸化ナトリウム水溶液 150 g を加え、激しく攪拌したのち、分液ロートにてヘキサン層を分取した。このヘキサン層を純水 100 g で 3 回洗浄したのち、エバポレーターを用いて溶媒を留去した。

このようにして処理されたポリビニルエーテル系化合物の 30℃における体積固有抵抗は  $1.80 \times 10^{12} \Omega \cdot \text{cm}$  であった。

## 実施例 16 (ポリプロピレングリコールの精製)

市販の粗ポリプロピレングリコール (重量平均分子量 950、40℃における動粘度  $38.45 \text{ mm}^2 / \text{秒}$ 、100℃における動粘度  $9.15 \text{ mm}^2 / \text{秒}$ ) の 30℃における体積固有抵抗は  $4.05 \times 10^{10} \Omega \cdot \text{cm}$  であった。

この粗ポリプロピレングリコール 150 g をイソノナン 300 g に溶解し、攪拌しながらシリカーアルミナ HA (触媒化成工業社製) 4.5 g を加え、窒素雰囲気下、室温で 1 時間攪拌した。

次いで、メンブランフィルターを用いてシリカーアルミナをろ過により除去したのち、エバポレーターを用いて溶媒を留去した。このようにして得られた精製ポリプロピレングリコールの 30℃における体積固有抵抗は  $2.15 \times 10^{12} \Omega \cdot \text{cm}$  であった。

産業上の利用可能性

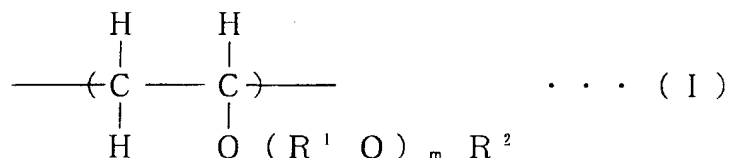
本発明によれば、潤滑油、特に冷凍機用潤滑油の成分として好適なポリビニルエーテル系化合物などの高純度含酸素化合物を吸着処理により効率よく製造することができる。

この方法により得られる高純度含酸素化合物を主成分とする潤滑油は、特に冷媒としてハイドロフルオロカーボンを用いる圧縮型冷凍機用として好適である。

## 請求の範囲

1. ポリビニルエーテル系化合物、ポリアルキレングリコール系化合物、ポリオールエステル系化合物、環状ポリエーテル系化合物及びカーボネート系化合物よりなる群から選ばれる含酸素化合物の製造方法において、粗ポリビニルエーテル系化合物、粗ポリアルキレングリコール系化合物、粗ポリオールエステル系化合物、粗環状ポリエーテル系化合物及び粗カーボネート系化合物よりなる群から選ばれる少なくとも一種の粗含酸素化合物を吸着剤で処理する工程を含むことを特徴とする高純度含酸素化合物の製造方法。

2. ポリビニルエーテル系化合物が、一般式 (I)



(式中、 $\text{R}^1$  は炭素数 1 ～ 10 の二価の分岐していてもよい炭化水素基、 $\text{R}^2$  は炭素数 1 ～ 20 の一価の分岐していてもよい炭化水素基、 $m$  はその平均値が 0 ～ 10 の数を示し、 $\text{R}^1 \text{O}$  が複数ある場合、複数の  $\text{R}^1 \text{O}$  はたがいに関係なく同一でも異なっていてもよく、また  $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$  及び  $m$  は、構成単位毎に同一でも異なっていてもよい。) で表される構成単位を有する化合物である請求項 1 記載の製造方法。

3. 吸着剤が、アルミニウム、鉄、チタン、ケイ素及びスズの中から選ばれた少なくとも一種の金属の酸化物、粘土鉱物、活性炭、又はイオン交換樹脂である請求項 1 又は 2 記載の製造方法。

4. 吸着剤が、活性炭、シリカーアルミナ、活性白土、ペントナイト、ゼオライト又は活性アルミナである請求項 1 又は 2 記載の製

造方法。

5. 請求項1～4のいずれかに記載の製造方法で得られる高純度ポリビニルエーテル系化合物を含有してなる潤滑油。

6. 請求項1, 3又は4記載の製造方法で得られる高純度のポリアルキレングリコール系化合物, ポリオールエステル系化合物, 環状ポリエーテル系化合物及びカーボネート系化合物よりなる群から選ばれる少なくとも一種の含酸素化合物を含有してなる潤滑油。

7. 請求項1～4のいずれかに記載の製造方法で得られる体積固有抵抗が $10^{14} \Omega \cdot \text{cm}$ 以上(30℃)の高純度ポリビニルエーテル系化合物を含有してなる潤滑油。

8. 請求項1, 3又は4記載の製造方法で得られる体積固有抵抗が $10^{12} \Omega \cdot \text{cm}$ 以上(30℃)の高純度ポリアルキレングリコール系化合物, ポリオールエステル系化合物及びカーボネート系化合物よりなる群から選ばれた少なくとも一種の含酸素化合物を含有してなる潤滑油。

9. 冷凍機用として用いられる請求項5～8のいずれかに記載の潤滑油。

10. 粗含酸素化合物を吸着剤で処理する工程が粗含酸素化合物を吸着剤と接触させる工程である請求項1記載の製造方法。

11. 粗ポリビニルエーテル系化合物の体積固有抵抗が $10^{14} \Omega \cdot \text{cm}$ 未満(30℃)であり、吸着剤での処理後に得られる高純度ポリビニルエーテル系化合物の体積固有抵抗が $10^{14} \Omega \cdot \text{cm}$ 以上(30℃)である請求項1～4または10のいずれかに記載の製造方法。

12. 粗ポリビニルエーテル系化合物の重量平均分子量が150～3000である請求項1～4、10または11のいずれかに記載の

製造方法。



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/06153

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C08F6/00, C08G64/40, C08G65/30, C10M107/24,  
C10M107/34// C10N20:00, C10N40:00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C08F6/00, C08G64/40, C08G65/30, C10M107/24,  
C10M107/34

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP, 51-138279, A (DAI-ICHI KOGYO SEIYAKU CO., LTD.), 29 November, 1976 (29.11.76), Claims (Family: none)	1-12
Y	JP, 10-46169, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 17 February, 1998 (17.02.98), Claims (Family: none)	1-12
Y	JP, 10-159734, A (Sanyo Electric Co., Ltd.), 16 June, 1998 (16.06.98), Claims & EP, 846749, A1	1-12
Y	JP, 10-147682, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 02 June, 1998 (02.06.98), Claims (Family: none)	1-12
Y	JP, 4-197407, A (Asahi Glass Co., Ltd.), 17 July, 1992 (17.07.92), Claims (Family: none)	1-12

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family
---	--

Date of the actual completion of the international search  
05 December, 2000 (05.12.00)

Date of mailing of the international search report  
19 December, 2000 (19.12.00)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/06153

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	US, 5384056, A (Mitsui Petrochemical Industries), 24 January, 1995 (24.01.95), Claims & EP, 551865, A & JP, 5-255680, A	1-12

## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/JPO0/06153

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.<sup>7</sup> C08F6/00、C08G64/40、C08G65/30、C10M107/24、  
C10M107/34// C10N20:00、C10N40:00

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.<sup>7</sup> C08F6/00、C08G64/40、C08G65/30、C10M107/24、  
C10M107/34

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP, 51-138279, A (第一工業製菓株式会社)、29. 11月、1976 (29. 11. 76)、特許請求の範囲 ファミリーなし	1-12
Y	JP, 10-46169, A (出光興産株式会社)、17. 2月. 1998 (17. 02. 98)、特許請求の範囲 ファミリーなし	1-12
Y	JP, 10-159734, A (三洋電機株式会社)、16. 6 月、1998 (16. 06. 98)、特許請求の範囲	1-12

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

05. 12. 00

国際調査報告の発送日

19.12.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

佐藤 邦彦

4J

8215

電話番号 03-3581-1101 内線 6827

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
	& EP, 846749, A1	
Y	JP, 10-147682, A (出光興産株式会社)、2. 6月. 1998 (02. 06. 98)、特許請求の範囲 ファミリーなし	1-12
Y	JP, 4-197407, A (旭硝子株式会社)、17. 7月. 1 992 (17. 07. 92)、特許請求の範囲 ファミリーなし	1-12
Y	US, 5384056, A (Mitsui Petrochemical Industrie s)、Jan. 24, 1995 (24. 01. 95)、特許請求の範囲 & EP, 551865, A & JP, 5-255680, A	1-12